

## **Kurzfassung**

Die Abwasserreinigung mit aerob granuliertem Schlamm ist ein bislang wenig erprobtes Verfahren. Die derzeit vorhandenen Erfahrungen zum Reinigungsbetrieb beziehen sich lediglich auf vereinzelte großtechnische Anlagen, die als sequencing batch reactors (SBR) nach dem Nereda-Verfahren betrieben werden sowie zahlreiche Studien im Labormaßstab. Der SBR-Betrieb hat sich aufgrund einer diskontinuierlichen Beschickung mit der Ausbildung von Substratgradienten im Reaktor als geeignet für die Granulierung erwiesen. Die Konfiguration von SBR-Anlagen zeichnet sich dadurch aus, dass alle biologischen Prozesse in einem Becken zeitlich hintereinander ablaufen. Im Rahmen des Projektes wurde untersucht, unter welchen Bedingungen eine aerobe Granulierung im kontinuierlich durchflossenen Betrieb realisiert werden kann. Dazu war es notwendig die Auswirkungen der Betriebsweise eines SBR auf die Granulierung zu untersuchen und dabei die Biomasse hinsichtlich des Absetzverhaltens und ihrer Struktur zu charakterisieren. Der Schwerpunkt der Studie lag auf der Beschreibung des SBR-Verfahrens hinsichtlich der Betriebsweise und Reinigungsleistung sowie der Übertragung der Versuchsbedingungen auf eine kontinuierlich durchflossene Versuchsanlage. Die Laborversuche im SBR dienten dazu, die Ergebnisse aus den bisher veröffentlichten Studien nachzubilden und darauf aufbauend eigene Erfahrungen zu schaffen, die eine Bewertung der Eignung des Verfahrens für den großtechnischen Einsatz zu lassen.

Es wurden vier Versuchsphasen durchgeführt, während denen die Einstellungen hinsichtlich der verwendeten Zykluseinteilung und Belüftungsregelung variiert wurden. Die Zykluszeiten umfassten 3 bis 6 Stunden mit einer anaeroben Beschickungsdauer von 60 bis 90 min. Die Beschickung erfolgte als plug-flow durch das abgesetzte Schlammbett. Die Selektion der Biomasse wurde über die Anwendung kurzer Absetzzeiten realisiert. Für die Versuche wurde neben kommunalem Abwasser auch Abwasser aus einem Gebäude der TU Wien sowie synthetisches Abwasser verwendet. In allen Versuchsphasen konnte eine Granulierung innerhalb von 3 bis 4 Wochen erreicht werden. Sowohl die mikroskopischen Untersuchungen, als auch die Messung der Partikelgrößen und ihrer Verteilung mittels Laser-Beugungsanalysator zeigten deutliche Veränderungen der verwendeten Impfschlämme hin zu kompakter aerob granulierter Biomasse mit Partikeldurchmessern über 1 mm. Der Schlammindex lag mit der Verwendung von Zulauf einer kommunalen Kläranlage in der Regel bei ca. 60 ml/g. Die  $SV_{10}/SV_{30}$ -Verhältnisse ergaben sich mit 1,0 bis 1,1. Lediglich mit der Verwendung von synthetischem Abwasser konnte ein ISV von 40 ml/g erreicht werden. Das Ergebnis dieser Versuchsphase verdeutlicht, dass synthetisches Abwasser ohne partikuläre Abwasserinhaltsstoffe eine kompaktere Schlammstruktur und bessere Absetzverhalten der aerob granulierten Biomasse ermöglicht. In den Versuchen wurden Schlammbelastungen von 0,25 bis 0,35 gCSB/(gTS·d) sowie Raumbelastungen von 0,5 und 1,0 gCSB/(L·d) angewendet. Hohe Schlammbelastungen führten zu unregelmäßigem sternenförmigen Wachstum der Granula. Teilweise hohe Schwebstoff-Konzentrationen im Ablauf der Versuchsanlage erforderten die Anpassung des Betriebes mit einer Senkung des Selektionsdrucks. Für die großtechnische Anwendung ist eine Nachbehandlung des Ablaufs aufgrund der hohen Schwebstoff-Konzentrationen einzuplanen, um die erforderliche Ablaufqualität sicherzustellen. Wie auch bereits von anderen Autoren berichtet wurde, bleibt bei der Reinigung von kommunalem Abwasser mit partikulären Stoffen immer ein Anteil an flockiger Biomasse im granulierten Schlamm erhalten.

Der flockige Anteil resultiert aus Schwebstoffen des Zulaufs, abgetrennten Partikeln der granulierten Biomasse und aus Biomassenwachstum auf dem zugeführten polymeren Substrat. Insgesamt wurde ein häufiges Auftreten festsitzender Ciliaten festgestellt. Während des Versuchsbetriebes im SBR ergab sich eine CSB-Entfernung von 85,0 bis 99,8%.

Die Belüftung der SBR erfolgte alternierend als auch unter durchgehend aerober Bedingungen. Während mit der alternierenden Belüftung eine Ges.N.-Entfernung von 70 bis 90% erreicht werden konnte, ergab sich unter durchgehend aeroben Bedingungen während der belüfteten Phase eine Ges.N.-Entfernung von 50 bis 70%, wobei die Ges.N.-Entfernung überwiegend aus der simultanen Nitrifikation und Denitrifikation innerhalb der Granula resultierte. Die Rezirkulation von nitratreichem Überstand erwies sich als effektive Methode für eine Erhöhung der Stickstoffentfernung, verursachte jedoch einen Anstieg des  $SV_{10}/SV_{30}$ -Verhältnisses. Die Phosphatentfernung korrelierte gut mit der Ges.N.-Entfernung und zeigte zeitweise erhebliche Schwankungen. Das Schlammalter, das verwendete Abwasser sowie die Temperatur beeinflussen die Phosphatentfernung. Eine vollständige Phosphatentfernung war unter den gewählten Bedingungen nicht möglich. Die Erkenntnisse aus dem SBR-Betrieb dienen dazu die Einstellungen für die kontinuierlich durchflossene Versuchsanlage zu wählen. Aus der SBR-Betriebsweise konnte abgeleitet werden, dass die Einhaltung strikt anaerober Bedingungen während der Beschickung sowie die Selektion der Biomasse wesentliche Voraussetzungen für die Granulierung des Schlammes sind.

Für die Untersuchungen in der kontinuierlich beschickten Versuchsanlage wurden drei Versuchsphasen mit unterschiedlichen anaeroben Reaktoren erprobt. Neben einem vollständig durchmischten anaeroben Reaktor, wurde ein geteilt anaerobes Volumen genutzt, wobei ein Schlauchreaktor (plug-flow) und ein vollständig durchmischter Reaktor kombiniert wurden. Die Partikelgrößenverteilung und die mikroskopischen Aufnahmen zeigten deutlich kompaktere Strukturen mit der gewählten Versuchsanordnung. Mit dem im Schlauchreaktor erzeugten plug-flow konnte die Bildung von granulierter Biomasse mit Durchmessern über 200  $\mu\text{m}$  erreicht werden. Mit den Einstellungen ergab sich eine Senkung des ISV auf ca. 85 ml/g. Das  $SV_{10}/SV_{30}$ -Verhältnis betrug 1,2 und lag damit geringfügig über den Schlammvolumenverhältnissen des SBR-Betriebes. Mit dem vollständig durchmischten anaeroben Reaktor und bei gleichzeitiger Verwendung von synthetischem Abwasser war eine Senkung des ISV auf bis zu 60 ml/g möglich. Die Schlammbelastungen lagen zwischen 0,19 und 0,36 gCSB/(gTS·d) und somit im Bereich der Versuche mit den SBR-Anlagen. Die Selektion der Biomasse erfolgte über die Nachklärung. Die Schlammvolumenbeschickung betrug für die Versuchsphasen 1 und 2 ca. 235 L/( $\text{m}^2\cdot\text{h}$ ). In Versuchsphase 3 wurde der Ablauf rezirkuliert und die Nachklärung stärker hydraulisch belastet. Die Schlammvolumenbeschickung lag dadurch bei 737 L/( $\text{m}^2\cdot\text{h}$ ). Über den Austrag flockiger Biomasse war ebenso eine vorübergehende Reduktion des ISV auf unter 80 ml/g möglich. Während der Versuchsphasen wurde die Reinigungsleistung der kontinuierlich durchflossenen Anlage intensiv untersucht. Die CSB-Entfernung lag zwischen 91,7 bis 95,3%. Die  $\text{NH}_4\text{-N}$ -Entfernung erreichte 95,6 bis 99,6%. Die höchste Ges.N.- und Ges.P.-Entfernung von 79,1 bzw. 44% konnte in Versuchsphase 1 erreicht werden.

Im Vergleich zu den Versuchen im SBR-Betrieb ergaben sich in der kontinuierlich durchflossenen Anlage schlechtere Absetzeigenschaften der granulierten Biomasse, die in einem höheren ISV sowie  $SV_{10}/SV_{30}$ -Verhältnissen ersichtlich wurden. Im Gegensatz zum SBR-Betrieb ist in kontinuierlich durchflossenen Anlagen der Einsatz von Rührern erforderlich. Die Ergebnisse aus dem SBR-Betrieb als auch der Literatur lassen vermuten, dass die verwendeten Rührer und Pumpen einen Einfluss auf die Schlammstruktur und das Absetzverhalten der Biomasse haben. Diese Vermutung wird von vereinzelt Publikationen bestätigt, sowie der Beobachtung, dass die Ablauf-Rezirkulation in einer Erhöhung der  $SV_{10}/SV_{30}$ -Verhältnisse resultierte.

Weitere Untersuchungen bezogen sich auf die anaerobe Abbaubarkeit des Schlammes sowie die Entwässerbarkeit. Mit den anaeroben Versuchen konnte eine spezifische Methanproduktion von aerob granuliertem Schlamm von 263 bis 285 ml  $CH_4/goTS$  sowie 178 bis 209 ml  $CH_4/gCSB$  ermittelt werden. Der  $oTS$ -Abbau lag zwischen 51 und 59%. In Verbindung mit den anaeroben Versuchen wurden Untersuchungen zur Entwässerbarkeit des Faulschlammes mit Hilfe einer Laborzentrifuge vorgenommen. Hierbei ergaben sich deutliche Unterschiede zur Entwässerbarkeit der Faulschlämme der flockigen Biomasse, die auf ein verschlechtertes Entwässerungsverhalten aerob granulierter Schlämme hindeuten, wobei weitergehende Untersuchungen unter Einbezug großtechnischer Entwässerungsaggregate erforderlich sind. Ursachen für ein verschlechtertes Entwässerungsverhalten können sowohl erhöhte EPS-Gehalte der aerob granulierten Biomasse sein, als auch erhöhte Phosphatkonzentrationen im Faulschlamm, welche aus der Rücklösung der biologischen Phosphatentfernung resultieren.

Die Untersuchungen zu den  $N_2O$ -Emissionen aus dem aerob granulierten Schlamm ergaben, dass  $N_2O$  hauptsächlich während der Nitrifikation gebildet wird. Die Emissionsfaktoren lagen hierbei zwischen 0,54 und 5,0% und somit teilweise über den Erfahrungswerten für kommunale Belebungsanlagen. Ein deutlicher Zusammenhang konnte zwischen den  $N_2O$ -Emissionen und der Aktivität der Nitrifikanten gesehen werden. Zudem waren die Emissionen mit steigenden Schlammbelastungen sowie Nitrit-Konzentrationen erhöht. Die Akkumulation von Nitrit ist charakteristisch für aerob granuliert Biomasse und resultiert aus einer veränderten Biozönose des Schlammes. Insgesamt bleibt zu berücksichtigen, dass die Laborbedingungen aufgrund der unterschiedlichen Bedingungen für die Belüftung nicht direkt auf den großtechnischen Betrieb übertragbar sind. Dennoch sind die gefundenen Einflussfaktoren auch für den großtechnischen Betrieb von Bedeutung.

In den vorliegenden Untersuchungen zeigte sich deutlich, dass für verlässliche Aussagen zur aeroben Granulierung unbedingt Versuche mit realen Abwässern erforderlich sind. Ergebnisse die auf der Verwendung von synthetischen Abwässern basieren, zeigen prinzipiell zu optimistische Werte hinsichtlich der Granulierung und dem Absetzverhalten der Biomasse. Dennoch zeigt der SBR-Betrieb, dass mit der aerob granulierten Biomasse eine deutlich bessere Schlammtrennung als mit flockiger Biomasse realisiert werden kann. Die Ergebnisse der Untersuchungen zur Reinigungsleistung bestätigen, dass das Verfahren für einen großtechnischen Einsatz durch aus in Frage kommt, sofern eine Nachbehandlung des Ablaufs berücksichtigt wird. Für die kontinuierlich durchflossene Anlage war unter den getesteten Bedingungen keine vergleichbare Verbesserung der Schlammstruktur und der Absetzeigenschaften möglich, sodass für diese Anlagenkonstellation die Vorzüge des Verfahrens weniger stark ausgeprägt sind.

## Abstract

Wastewater treatment with aerobic granular sludge is still not a proven technology. The experiences of the treatment process relate to a few large scale plants operated as SBR (Nereda technology) and numerous studies with laboratory scale reactors. SBR technology is well established for the granulation because of a discontinuous operation mode and the formation of substrate gradients. The configuration of SBRs is characterized by the fact that all biological processes take place in one basin with a time offset. Within the framework of this project, it was investigated under which conditions granulation in continuous flow operation can be realized. For this purpose, it was necessary to investigate the effects of the SBR operation and to characterize the biomass with regard to the settling behavior and sludge structure. The focus of the study was the description of the SBR approach with regard to the operation and cleaning performance as well as the transfer of the experimental conditions to the continuous flow setup. The laboratory tests in the SBR were used to replicate the results of the published studies and to create own experiences with real wastewater, which allow an assessment of the suitability of the process for large-scale use.

Four test phases were carried out. The settings varied with respect to the cycle operation and aeration control. The cycle times lasted from 3 to 6 hours with an anaerobic feeding time of 60 to 90 min. The reactors were fed as plug-flow through the settled sludge bed. The selection for granular sludge was realized by using short settling times. Municipal wastewater from the TU Wien as well as synthetic wastewater were used for the experiments. In all test phases granulation was achieved within 3 to 4 weeks. Compared to the seed sludge, the microscopic images as well as the particle sizes showed significant changes to compact aerobic granular biomass with diameters above 1 mm. The sludge volume index when using wastewater from a municipal WWTP was generally around 60 ml/g. The  $SV_{10}/SV_{30}$  ratios were found to be 1.0 to 1.1. An SVI of 40 ml/g was only achieved with the use of synthetic wastewater. The result of this experimental phase indicate that synthetic wastewater without particulate constituents enable a better sludge structure and settling behavior of the aerobic granular biomass. In the tests sludge loadings in a range of 0.25 to 0.35 gCOD/(gTSS·d) and volumetric loadings of 0.5 and 1.0 gCOD/(L·d) were applied. High sludge loadings led to an irregular growth of the granules. Temporary high concentrations of suspended solids required the adjustment of the experiments with a reduction of the selection pressure. Due to the high concentrations of suspended solids a post-treatment step should be considered for large-scale applications to ensure the required effluent quality. As already reported by other authors, the flocculent biomass in the granular sludge is always maintained when sewage with particulate matter is treated. The flocculent fraction results from suspended solids of the feed, separated particles of the granules and from biomass growth on the polymeric substrate from the influent. Overall, there was an increased growth of fixed ciliates compared to the conventional activated sludge. During the experiments with the SBRs, a COD removal of 85,0 to 99.8% was observed.

An alternating aeration was applied for the SBRs, as well as a controlled aeration to achieve continuous aerobic conditions. While the alternating aeration mode a total nitrogen removal of 70 to 90% could be achieved, the nitrogen removal under continuous aerobic conditions during the aerated phase reached 50 to 70%, while the removal resulted hereby mainly from simultaneous nitrification and denitrification inside the granules. The recirculation of nitrate-rich supernatant was an effective method to increase the nitrogen

removal. However, with this pumping an increase in the  $SV_{10}/SV_{30}$  ratio was observed. Phosphate removal correlated with the nitrogen removal and showed significant fluctuations. The sludge age, wastewater composition and temperature influence the phosphate removal mainly. Complete phosphate removal was not possible under the applied conditions.

The findings from the SBR were used to select the settings for the continuous flow operation. From the SBR mode, it could be deduced, that the anaerobic conditions during feeding as well as the selection of biomass are essential prerequisites for the granulation of activated sludge. Three test phases with different anaerobic reactors were used to investigate aerobic granulation under continuous flow operation. In addition to a completely mixed anaerobic reactor, a divided anaerobic volume with a plug-flow and mixed reactor was used for the tests. The particle size distribution and microscopic images showed clearly more compact structures with the applied setup. With the combined plug-flow and mixed reactor the formation of granular biomass with sizes over 200  $\mu\text{m}$  could be achieved. The settings resulted in a reduction of the SVI to about 85 ml/g. The  $SV_{10}/SV_{30}$  ratio was 1.2 and slightly above the sludge volume ratios of the granular sludge from the SBR. With the complete mixed anaerobic reactor and the use of synthetic wastewater, it was possible to reduce the ISV down to 70 ml/g. The sludge loading were between 0.19 and 0.36 gCOD/(gTSS·d) and thus in the range with the conditions of the SBR plants. The hydraulic selection pressure to select for granules was achieved through a high hydraulic loading of the secondary clarifier.

The sludge volume surface loading was found to be about 235 L/( $\text{m}^2\cdot\text{h}$ ) during the experimental phases 1 and 2. During experimental phase 3, the effluent was recirculated and thus the hydraulic load of the clarifier increased. The sludge volume surface loading was thereby 737 L/( $\text{m}^2\cdot\text{h}$ ). A temporary reduction of the ISV to below 80 ml/g was possible due to this discharge of flocculent biomass. During the experimental phases, the cleaning performance of the continuous flow plant was intensively investigated. The COD removal reached 91.7 to 95.3%. The  $\text{NH}_4\text{-N}$  removal was 95.6 and 99.6%. The highest nitrogen and phosphate removal of 79.1 and 44% could be achieved in phase 1. Compared to the experiments with the SBR, the settling properties of the granules grown in the continuous flow plant, showed a higher SVI and  $SV_{10}/SV_{30}$  ratios. In contrast to the SBR operation, the use of stirrers is required in the continuous flow configuration to avoid sludge sedimentation. It can be assumed from the results of the SBR operation and the literature, that the stirrer and pumps have an influence on the sludge structure and settling behavior of the granular biomass. This assumption is confirmed by a few publications, reporting about smaller granules and lower settling velocity by the use of stirrer and the observation that the recirculation resulted in an increased  $SV_{10}/SV_{30}$  ratio.

Further investigations were carried out to quantify the anaerobic degradation of the aerobic granular sludge and the dewaterability of the digested sludge. The specific methane production of aerobic granular sludge was found in a range of 263 and 285  $\text{mlCH}_4/\text{gVSS}$  as well as 178 and 209  $\text{mlCH}_4/\text{gCOD}$  using the fermentation tests. The VSS removal reached 51 and 59%. In combination with the anaerobic tests, investigations for the dewaterability were carried out by the use of a laboratory centrifuge. The experiments showed clear differences in the dewaterability of the sludge samples, which indicates a deteriorated dewatering behavior of aerobic granular sludge, requiring further investigations involving large-scale

dewatering aggregates. Reasons for a deteriorated dewatering behaviour can be the increased EPS levels of the granules and increased phosphate concentrations of the digested sludge, which result from the release of the internally stored phosphate.

The investigations on the N<sub>2</sub>O emissions from the aerobic granular sludge revealed, that N<sub>2</sub>O is mainly formed during nitrification. The emission factors ranged between 0.54 and 5.0% and were thus partly above the reported experience for municipal WWTP. There was a clear correlation between the N<sub>2</sub>O emissions and the activity of the nitrifiers. In addition, the emissions increase with higher sludge loadings and nitrite concentrations. The accumulation of nitrite is characteristic of aerobic granular sludge and results from a special biocoenosis of the biomass. Overall, it must be taken into account that the laboratory conditions can not be directly transferred to the large-scale operation, especially due to the different conditions for aeration. Nevertheless, the identified factors are also important for large-scale.

With the present investigations, it was clearly shown, that for reliable statements on aerobic granulation, experiments with real wastewater are essential. The results based on synthetic sewage show in principle optimistic values with regard to the granulation and settling behavior. Nevertheless, the SBR operation shows that with the aerobic granular biomass a significantly better sludge separation can be realized. The results of the cleaning performance confirm that the process is suitable for large-scale applications when pre-treatment facilities are considered. Under the tested conditions for the continuous flow, it was not possible to achieve comparable improvements of the sludge structure and settling properties, so that the advantages of the process are not as significant for this plant constellation.